

# ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПОДВИЖНОСТИ ЭКСИТОНОВ В НИТРИДЕ ГАЛЛИЯ ПО РЕЗУЛЬТАТАМ ИЗМЕРЕНИЙ КАТОДОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ

А.Н. Поляков<sup>1)</sup>, М.А. Степович<sup>1), 2)</sup>, Д.В. Туртин<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup>Калужский государственный университет им. К.Э. Циолковского,  
ул. Степана Разина, д.26, Калуга, 248023, Россия, [andrei-polyakov@mail.ru](mailto:andrei-polyakov@mail.ru), [m.stepovich@mail.ru](mailto:m.stepovich@mail.ru)

<sup>2)</sup>Российский экономический университет им. Г.В. Плеханова, Ивановский филиал,  
ул. Дзержинского, 53, Иваново, 153025, Россия, [turtin@mail.ru](mailto:turtin@mail.ru)

Показана возможность использования времяпролетных катодолюминесцентных измерений для оценки коэффициента диффузии и подвижности экситонов в прямозонных полупроводниковых материалах. Приведены результаты экспериментальных исследований монокристаллического нитрида галлия. На основе анализа температурной зависимости подвижности экситонов (5-300 К) сделаны некоторые предположения о механизмах рассеяния, действующих в исследуемых образцах.

## Введение

Исследования транспорта экситонов в полупроводниковых материалах вызывает интерес как с теоретической точки зрения описания физических процессов, так и с практической точки зрения — для технологии создания, совершенствования и применения полупроводниковых устройств. Ранее [1-4] нами было показано, что низкотемпературные времяпролетные катодолюминесцентные (КЛ) исследования транспорта экситонов для полупроводниковых образцов, покрытых светонепроницаемой маской специальной геометрии, позволяют получить информацию о действующих в материале механизмах рассеяния, которые затруднительно или невозможно выделить при традиционных электрических исследованиях транспорта носителей заряда (НЗ). Например, из анализа зависимости подвижности экситонов от температуры можно узнать о рассеянии на границах гетеропереходов или поверхности образца (влияние механических шероховатостей, дипольных моментов, поляризации) — такие механизмы рассеяния наиболее ярко проявляют себя при низких температурах (до десятков Кельвина). Для НЗ при таких температурах доминирует рассеяние на ионизированных примесях, в отличие от электрически нейтральных экситонов. Однако к недостаткам такого подхода при анализе результатов эксперимента стоит отнести применение для идентификации параметров материала (в первую очередь коэффициента диффузии экситонов) математической модели латеральной (двумерной) диффузии экситонов (и соответствующей ей модели КЛ). Такое упрощение корректно использовать лишь при условии генерации экситонов в узкой (по сравнению с размерами экситонов и размерами образца) области образца, например, в приповерхностной области образца или в квантовой яме (КЯ). В данной работе предыдущий результат обобщен в виде методики проведения измерений и обработки их результатов на случай цилиндрической области генерации и трехмерной диффузии экситонов, что может позволить расширить область применения предлагаемого подхода. Среди материалов в настоящее время большой интерес проявляется в отношении исследований широкозонных полупроводниковых материалов и гетероструктур на ос-

нове оксида цинка и нитрида галлия, имеющих довольно близкие свойства. Это, безусловно, связано с тем, что в силу свойств этих материалов полупроводниковые устройства, изготовленные на их основе, могут работать, в том числе, при высоких напряжениях и в неблагоприятных условиях внешней среды [5]. В данной работе в развитие этого направления при помощи предложенной методики измерений исследованы некоторые свойства образцов монокристаллического GaN.

## Основная часть

Для экспериментальных времяпролетных исследований диффузии экситонов использовались образцы, покрытые непроницаемой для КЛ излучения маской, имеющей круглые отверстия различного диаметра, что не является редкостью для разного рода времяпролетных измерений. Ранее такая геометрия образца была реализована для фотолюминесцентных (ФЛ) [6-8] и КЛ экспериментов [2-4] по исследованию подвижности экситонов в КЯ материалов на основе арсенида галлия (ФЛ) [6-8], нитрида галлия [2] и оксида цинка [3, 4] (КЛ), в которых использовались математические модели, основанные как на численном (ФЛ), так и на аналитическом (КЛ) решении двумерных уравнений диффузии экситонов.

Эксперимент осуществляется следующим образом. Катодолюминесцентное излучение возбуждалось в центре отверстия при помощи пульсирующего электронного пучка и регистрировалось в области спектра, характерной для рекомбинации свободных экситонов. После того, как в образце установится равновесие между процессами генерации и рекомбинации, возбуждение прекращалось: электронный пучок отклонялся системой blankирования. Характер следующего за этим спада интенсивности КЛ зависит в общем случае только от известного радиуса отверстия  $R$ , времени жизни экситонов  $\tau$ , которое может быть получено из измерений в открытой области образца вдали от края маски, и коэффициента диффузии  $D$ , характеризующего их движение под маску. Это может позволить при наличии математической модели, описывающей спад интенсивности КЛ, на основе анализа экспериментальных данных получать оценки коэффициента диффузии

экситонов путем решения соответствующей обратной задачи.

В результате аналитического решения трёхмерного уравнения диффузии экситонов нами получено следующее выражение для кинетики спада интенсивности КЛ, регистрируемой из круглого отверстия:

$$I(t) \cong A \int_0^{\infty} \frac{b(v)}{va(v)} \left[ 1 + \exp(-a^2(v)Dt) - \operatorname{erf}(a(v)\sqrt{Dt}) \right] J_1(vR) dv.$$

Здесь  $J_1(x)$  — функция Бесселя первого рода,

$$b(v) = \left( 1 + \operatorname{erf} \left( \sqrt{v^2 + \chi^2} / (2\sqrt{c_1}) \right) \right) (v/a(v)), \quad a(v) =$$

$$= \sqrt{v^2 + \chi^2}, \quad A = 2\pi R c_2 \sqrt{\pi} / (8c_1 \sqrt{c_1}) \exp(\chi^2 / (4c_1)),$$

$c_1 = 1/2\sigma^2$ ,  $D$  — диффузионная длина экситонов,  $\sigma$  — дисперсия энергий электронов пучка,  $\chi = 1/\lambda$ . Показано, что в предельном случае (при  $R \rightarrow \infty$ ) формула переходит в выражение  $I(t) \cong N_0 \exp(-t/\tau)$  ( $N_0$  — общее число генерированных экситонов), характерное для спада интенсивности КЛ в открытой области образца и используемое нами для определения времени жизни экситонов. Кроме этого показано, что используемое нами ранее [1-4] выражение для КЛ на основе решения двумерных уравнений диффузии является частным случаем для полученного выражения.

Было проведено математическое моделирование, которое показало, что модель корректно описывает изучаемые явления и позволяет корректно определять значения коэффициента диффузии экситонов. Также показано, что использование описанной выше схемы времяпролетных КЛ измерений может приводить к отягощению экспериментальных данных ошибками. Основными источниками ошибок при измерении и вычислении интенсивности КЛ (значения функции) в эксперименте являются погрешность измерения прибора, погрешность в измерении геометрических размеров отверстия, несовершенство формы отверстия, технологическое несовершенство края маски, прецессия электронного пучка, ошибка при оценивании величины времени жизни экситонов  $\tau$  по кинетике спада интенсивности КЛ в открытой области. Ошибка при измерении времени (аргумента функции), прежде всего, связана с тем, что затруднительно определить начальную точку спада интенсивности КЛ. Причиной этого являются зашумленность регистрируемого сигнала КЛ и то, что отклонение электронного пучка от образца и прекращение генерации экситонов не может быть произведено мгновенно: временное разрешение применяемой в наших экспериментах установки составляет 35 пс. Поэтому для получения корректных оценок коэффициента диффузии желательно использовать методы, позволяющие учесть ошибки измерения как интенсивности катодолюминесценции, так и других величин, входящих в выражение (1). Например, может быть применен метод конъюгентного анализа (МКА) [9], который уже показал свою эффективность при решении некоторых задач количественной КЛ микроскопии [2, 3, 10, 11].

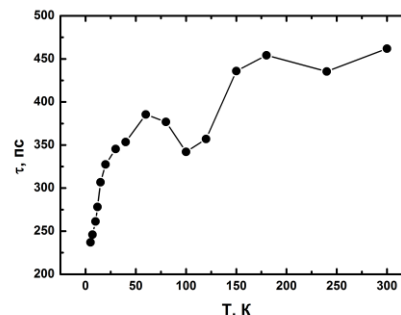


Рис. 1. Температурная зависимость времени жизни  $\tau$  экситонов в образце монокристаллического GaN.

В качестве объекта экспериментального исследования выступали образцы монокристаллического нитрида галлия, которые были получены методом химического осаждения из газовой фазы с использованием металлоорганических соединений в лабораториях Института Фердинанда Брауна, г. Берлин, Германия (Ferdinand-Braun-Institut). Они были покрыты тонкой (160 нм) золотой маской, полностью непроницаемой для КЛ излучения. Для получения круглых отверстий в маске перед её нанесением на их поверхность помещались полистереновые шарики различного диаметра (от десятых долей до единиц микрометра), которые удалялись после напыления золота.

Экспериментальные КЛ измерения проводились в открытой области образца и в практически круглом отверстии в маске радиусом  $R=0.725$  мкм для температур в диапазоне 5-300 К. Сигнал КЛ регистрировался на частоте, соответствующей излучательной рекомбинации свободных экситонов. Характер изменения спада интенсивности КЛ в открытой области образца с увеличением температуры соответствовал увеличению времени жизни экситонов  $\tau$ . Количественные данные о зависимости  $\tau$  отображены на рис. 1:  $\tau(T)$  возрастает от 236 пс при 5 К до 461 пс при 300 К при незначительном снижении между 100 и 150 К.

Значения  $\tau(T)$  использовались для оценки значений коэффициента диффузии свободных экситонов  $D(T)$ . При расчётах использовались экспериментальные данные о спаде интенсивности КЛ из отверстия радиусом  $R=0.725$  мкм и математическая модель спада интенсивности КЛ, описанная выше. При расчётах принималось, что профиль области возбуждения описывается функцией Гаусса. Диаметр электронного зонда принимался равным  $d_p=10$  нм, что соответствует характеристикам применяемой нами измерительной аппаратуры. С использованием соотношения Эйнштейна непосредственно на основе построенной зависимости  $D(T)$  была получена зависимость подвижности  $\mu$  от температуры, которая изображена на рис. 2. В промежутке между 5 и 15 К значение подвижности возрастает примерно, как  $\mu \sim T^{0.5}$ , что, по-видимому, связано преобладанием рассеяния на нейтральных примесях и рассеяния на границе образца. Последнее объясняется следующим образом. Может быть пока-

зано [3], что в условиях наших экспериментов: низкое ускоряющее напряжение (5 кэВ) и высокий коэффициент поглощения на частоте рекомбинационного излучения свободных экситонов (около  $3 \times 10^4 \text{ см}^{-1}$  [5, 12-14]) — сигнал КЛ экситонов регистрируется с глубины не более нескольких десятых микрометра. При этом быстрая (время жизни экситона от десятков до нескольких сотен пикосекунд) кинетика спада люминесценции свободных экситонов в нитриде галлия, которая проявлялась в наших измерениях, характеризует в первую очередь рекомбинацию экситонов у поверхности образца, а выход излучения с больших глубин маловероятен [5]. Для более высоких температур значения  $\mu$  убывают, как  $\mu \sim T^{-0.7}$ . Это близко к  $\mu \sim T^{-0.5}$ , что соответствует рассеянию на акустических фононах (пьезоэлектрический механизм) [15].

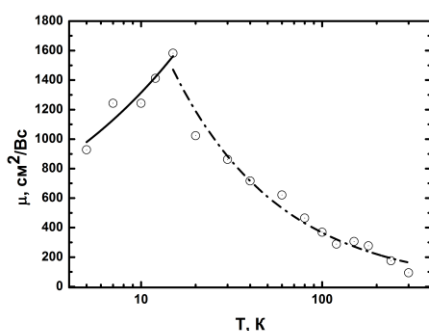


Рис. 2. Температурная зависимость подвижности  $\mu$  экситонов в образце монокристаллического GaN. Сплошная линия — зависимость  $\mu \sim T^{-0.5}$ , штрих-пунктирная линия — зависимость  $\mu \sim T^{-0.7}$ .

### Заключение

Представлены результаты экспериментальных времяпролетных КЛ исследований образцов монокристаллического GaN, покрытого золотой маской специальной геометрии. Показана возможность применения такой конфигурации образца для оценки коэффициента диффузии, диффузионной длины и подвижности свободного экситона. Анализ температурной зависимости подвижности позволил сделать предположение о механизмах рассеяния, характерных для данного образца. Полученные результаты могут быть использованы при проектировании и создании полупроводниковых устройств на основе нитрида гал-

лия, а описанная схема экспериментальных измерений и теоретическая модель — для исследований рассеяния и в других полупроводниковых материалах.

Исследования проведены при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ (государственное задание, проект № 1416), а также Российского фонда фундаментальных исследований и правительства Калужской области (проект № 14-42-03062).

### Список литературы

1. Поляков А.Н., Noltemeyer M., Hempel T., Christen J., Степович М.А. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2011. № 11. С. 35-40.
2. Поляков А.Н., Noltemeyer M., Hempel T., Christen J., Степович М.А. // Прикладная физика. 2012. № 6. С. 41-46.
3. Поляков А.Н., Noltemeyer M., Hempel T., Christen J., Степович М.А. // Известия РАН. Серия физическая. 2012. Т. 76. № 9. С. 1082-1085.
4. Noltemeyer M., Bertram F., Hempel T., Bastek B., Polyakov A.N., Christen J., Brandt M., Lorenz M., Grundmann M. // Journal of Materials Research. 2012. V. 27. Issue 17. P. 2225-2231.
5. Properties, processing and application of GaN and related semiconductors / Ed. by J.H. Edgar. London: INSPEC, 1999. 830 p.
6. Hillmer H., Forchel A., Hansmann S. et al. // Phys. Rev. B. 1989. Vol. 39, No. 15. P. 10901-10912.
7. Hillmer H., Hansmann S., Forchel A. et al. // Appl. Phys. Lett. 1988. V. 53. № 20. P. 1937-1939.
8. Hillmer H., Forchel A., Sauer R., Tu C. W. // Phys. Rev. B. 1990. Vol. 42, No. 5. P. 3220-3223.
9. Грешилов А.А. Анализ и синтез стохастических систем. Параметрические модели и конъюнктный анализ. М.: Радио и связь, 1990. 320 с.
10. Степович М.А. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2000. № 5. С. 69-74.
11. Михеев Н.Н., Поляков А.Н., Степович М.А. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2009. № 10. С. 87-93.
12. Properties of group III nitrides / Ed. by J.H. Edgar. London: INSPEC, 1994. 302 p.
13. Акчурун Р.Х., Мармалюк А.А. // Материаловедение. 1999. № 9. С. 950-962.
14. Group III nitride semiconductor compounds / Ed. by B. Gil. Oxford: Oxford University Press, 1998. 492 p.
15. Yu P., Cardona M. Fundamentals of Semiconductors. Physics and Materials Properties. 3rd edition. Berlin, Heidelberg, New York: Springer, 2005. 650 p.

### DETERMINATION OF EXCITONS MOBILITY IN GALLIUM NITRIDE FROM MEASUREMENTS OF CATHODOLUMINESCENCE

Andrey Polyakov<sup>1)</sup>, Mikhail Stepovich<sup>1), 2)</sup>, Dmitriy Turtin<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> Tsiolkovsky Kaluga State University,

Stepan Razina st., 26, Kaluga, 248023, Russia, andrei-polyakov@mail.ru, m.stepovich@mail.ru

<sup>2)</sup> Plekhanov Russian University of Economics, Ivanovo branch,  
Dzerzhinsky st., 53, Ivanovo, 153025, Russia, turtin@mail.ru

Possibility of time-of-flight cathodoluminescence measurements usage for an estimation of diffusion constant and mobility of excitons in direct-gap semiconductors is shown. Results of experimental researches of gallium nitride are presented. On the basis of the analysis of excitonic mobility temperature dependence (5-300 K) assumptions about scattering mechanisms are formulated.